

Title	Numerical Investigation of Ammonia-fueled Planar SOFC Stack - Internal and External Cooling Effects( Abstract_要旨 )
Author(s)	Tan, Wee Choon
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2018-11-26
URL	<a href="https://doi.org/10.14989/doctor.k21424">https://doi.org/10.14989/doctor.k21424</a>
Right	許諾条件により本文は2019-10-01に公開
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

京都大学	博士（工学）	氏名	Tan Wee Choon
論文題目	Numerical Investigation of Ammonia-fueled Planar SOFC Stack – Internal and External Cooling Effects（アンモニア供給平板型 SOFC スタックの数値解析的研究 – 内部および外部冷却の効果）		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>本論文は、燃料電池の中でも作動温度が最も高く高効率発電として期待される固体酸化物形燃料電池（Solid Oxide Fuel Cell: SOFC）を対象とし、そのセルを積み重ねたスタックにおける電気化学反応及び化学反応を伴う熱物質輸送現象と、その結果として得られる発電性能に関し、とりわけスタックの冷却方法の影響に焦点を当てて、数値解析により解明することを目的としている。</p> <p>第1章 Introductionでは、本論文の背景と概要につき述べている。構造的には燃料極支持型平板SOFCを対象とするが、燃料としては従来方式のメタンを改質した水素ではなく、アンモニアの分解反応から得た水素を用いる系を想定している。これは、将来の水素社会を見据えた場合にエネルギーキャリアとしてのアンモニアの特徴、すなわち常温でも比較的低い圧力で液化させやすいため可搬性に優れ、またアンモニアが合成された後の分解反応からは地球温暖化の原因とされる二酸化炭素を生じないという目的に合致する点からの選択であると述べている。また、スタック全体を断熱容器内に保持し熱自立した系での熱管理では、発電反応にともなう発熱によって高温になるスタックの冷却とともに、吸熱反応であるアンモニア分解に要する熱の取り回しが重要であることを述べ、以下の三つの研究課題を設定している。すなわち、（A）SOFCスタックに隣接して設置した別置きアンモニア分解器に対し、スタック表面からの熱ふく射で熱供給を行う系（熱ふく射によるスタックの外部冷却）、（B）アンモニアをSOFCに直接供給し、燃料極に含まれるニッケルを触媒として分解する際の反応熱（吸熱）を利用してスタックを冷却する系（吸熱反応によるスタックの内部冷却）、（C）空気流による対流冷却においてスタックへの空気流の導入方向を種々変化させた系（対流伝熱によるスタックの内部冷却）、を検討すると述べている。</p> <p>第2章 Numerical modelでは、数値解析モデルと計算結果の評価手法の概要について説明している。まず、3次元のスタック計算を相対的に小さな計算負荷で可能とすべく、流路高さ（スタック厚さ）方向には各要素内で積分操作を施したものと等価な擬3次元モデルを用いることを提案している。すなわち、セパレータ（固体相）、金属多孔体を集電体として挿入した空気流路（固体相と流体相）、セル（固体相）、金属多孔体を集電体として挿入した燃料流路（固体相と流体相）、セパレータ（固体相）の5層における各種輸送方程式を定式化している。なお、セル内での輸送現象をできる限り厳密に反映させて発熱密度分布を得るため、実際の多孔質電極の微構造情報を取り込み活性化過電圧やオーム過電圧の影響も考慮できる半解析的電極モデルを開発している。</p> <p>第3章 Verification and validation of modelでは、次章以降の議論に先立ち、本論文で提案する数値解析モデルの妥当性を検討している。比較対象としては、アンモニアを燃料とする詳細な実験結果はまだ入手できないことから、その前段階として、ポーランドの国際共同研究先により行われた水素を燃料とするスタック実験の結果を参照している。本モデルは調整パラメータを用いずに概ね満足のいく一致を得ている。</p> <p>第4章 Indirect ammonia fueled cellでは、前述の課題（A）として、アンモニア</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	Tan Wee Choon
<p>“間接”内部分解型SOFCでスタックに隣接するアンモニア分解器への熱ふく射による熱供給を想定し、単セル発電面積一定の条件のもと、主にセルのアスペクト比（流れ方向長さ／スパン方向長さ）の影響を検討している。本研究では計算条件を、アンモニアと空気の流入温度と流量を固定し、セルのアスペクト比を0.13から7.68まで変化させ、アンモニア分解に要する熱量の供給が可能となるアスペクト比や燃料利用率の条件を調べている。アスペクト比が減少するとふく射伝熱の面積も減少し、また燃料利用率が減少すると発電反応に伴う発熱量も減少するので、アンモニア分解の熱的自立性はこれらのパラメータが増加するほど担保される傾向にあるが、発電効率を高める点からは、最適なアスペクト比があることを明らかにしている。またセル面内分布の統計的な解析により局所の温度や電流密度の不均一を定量的に評価している。</p> <p>第5章 Direct ammonia fueled cellでは、前述の課題（B）として、純アンモニアないし一部が事前分解されたアンモニア燃料をSOFCに直接供給する“直接”内部分解型SOFCを対象として検討している。なお、本章では多孔体である燃料極内でのアンモニア分解反応の分布やガス拡散の予測精度を上げるため、燃料極内ガス拡散のみ3次元解析を行うものとしFick Modelに替わってDusty-gas Modelを導入している。第3章で述べたように現時点では実験データとの比較はできないため、Tanが所属する研究グループのアンモニア直接供給SOFCの詳細な単セル数値解析と比較することにより、擬似3次元化に際して導入した数値解析モデルの妥当性を確認している。計算条件は第4章と同様に流入温度と流量を固定しているが、流入時のアンモニア事前分解率を考慮した点で異なり、アスペクト比や燃料利用率を変化させて調べた点は第4章と同様である。事前分解率に応じた直接内部分解による吸熱と、燃料利用率に応じた発電反応による発熱が、システム内温度分布を通じて発電効率および熱自立性に影響を与えること、さらにその程度がセルアスペクト比によって異なることを明らかにしている。</p> <p>第6章 Direct and indirect ammonia fueled stackでは、前述の課題（C）として、従来から用いられている燃料流と空気流の流れ方向の組み合わせ（Ⅰ 並流式、Ⅱ 対向流式、Ⅲ 直交流式）に加え、燃料流を一定方向に固定したうえで空気流のみ交互に流れ方向を変える新たな流れ方式、すなわち並流式と対向流式を折衷したようなⅣ 平行交互空気流式と、ⅢにⅣのような性格を持たせたⅤ 直交交互空気流式の二つの新提案を行い、間接および直接アンモニア供給の両者に対して、これらの対流伝熱の影響を検討している。セルは70mmの正方形である以外は前章と同様な5層からなるユニットを8段積み重ねている。計算条件の設定は基本的には第5章と同様である（アスペクト比は1に固定）。計算結果の検討は、主に8段の中間に位置する4段目に注目して行い、電流密度、温度、水素モル分率などのセル面内分布の詳細を調べるとともにトータルな発電効率に及ぼす流れ方式の影響を明らかにしている。本研究で提案したⅣとⅤは、諸量の面内分布の均一化という点で従来のⅡやⅢより優れ、また発電効率の点で従来のⅠ～Ⅲのいずれよりも優れることを明らかにし、これは交互流が望ましい熱循環を実現していることによると考察している。</p> <p>最後に第7章 Conclusionにおいて、本論文で得られた成果について要約するとともに、考えられる今後の展開を提案している。</p>			

## (論文審査の結果の要旨)

本論文は、燃料電池の中でも作動温度が最も高く高効率発電として期待される固体酸化燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell: SOFC) を対象とし、そのセルを積み重ねたスタックにおける電気化学反応及び化学反応を伴う熱物質輸送現象と、その結果として得られる発電性能に関し、とりわけスタックの冷却方法の影響に焦点を当てて、数値解析により解明したものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

第1章 Introduction では、本論文の背景につき述べた上で研究課題の設定を行った。構造的には燃料極支持型平板 SOFC を対象とするが、燃料としては従来方式のメタンを改質した水素ではなく、アンモニアの分解反応から得た水素を用いる系を想定した。これは、将来の水素社会を見据えた場合にエネルギーキャリアとしてのアンモニアの特徴、すなわち常温でも比較的低い圧力で液化させやすいため可搬性に優れ、またアンモニアが合成された後の分解反応からは地球温暖化の原因とされる二酸化炭素を生じないという目的に合致する点からの選択であることによる。さらに、スタック全体を断熱容器内に保持し熱自立した系での熱管理では、発電反応にともなう発熱によって高温になるスタックの冷却とともに、吸熱反応であるアンモニア分解に要する熱の取り回しが重要であることを述べ、これらの考察から、以下の三つの研究課題 A、B、C を設定し、それぞれ第4章、第5章、第6章で検討するとした。(A) SOFC スタックに隣接して設置した別置きアンモニア分解器に対し、スタック表面からの熱ふく射で熱供給を行う系(熱ふく射によるスタックの外部冷却)、(B) アンモニアを SOFC に直接供給し、燃料極に含まれるニッケルを触媒として分解する際の反応熱(吸熱)を利用してスタックを冷却する系(吸熱反応によるスタックの内部冷却)、(C) 空気流による対流冷却においてスタックへの空気流の導入方向を種々変化させた系(対流伝熱によるスタックの内部冷却)。

第2章 Numerical model では、まず、3次元のスタック計算を相対的に小さな計算負荷で可能とすべく、流路高さ(スタック厚さ)方向には各要素内で積分操作を施したものと等価な擬3次元モデルを用いることを提案した。すなわち、セパレータ(固体相)、金属多孔体を集電体として挿入した空気流路(固体相と流体相)、セル(固体相)、金属多孔体を集電体として挿入した燃料流路(固体相と流体相)、セパレータ(固体相)の5層における各種輸送方程式を定式化した。なお、セル内での輸送現象をできる限り厳密に反映させて発熱密度分布を得るため、実際の多孔質電極の微構造情報を取り込み活性化過電圧やオーム過電圧の影響も考慮できる半解析的電極モデルを開発した。

第3章 Verification and validation of model では、まず、本論文で提案する数値解析モデルの妥当性を検討した。比較対象としては、アンモニアを燃料とする詳細な実験結果はまだ入手できないことから、その前段階として、ポーランドの国際共同研究先により行われた水素を燃料とするスタック実験の結果を参照した。その結果、本モデルは調整パラメータを用いずに概ね満足のいく一致を得た。

第4章 Indirect ammonia fueled cell では、前述の課題(A)として、アンモニア

“間接”内部分解型 SOFC でスタックに隣接するアンモニア分解器への熱ふく射による熱供給を想定し、単セル発電面積一定の条件のもと、主にセルのアスペクト比（流れ方向長さ／スパン方向長さ）の影響を検討した。本研究では計算条件を、アンモニアと空気の流入温度と流量を固定し、セルのアスペクト比を 0.13 から 7.68 まで変化させ、アンモニア分解に要する熱量の供給が可能となるアスペクト比や燃料利用率の条件を調べた。アスペクト比が減少するとふく射伝熱の面積も減少し、また燃料利用率が減少すると発電反応に伴う発熱量も減少するので、アンモニア分解の熱的自立性はこれらのパラメータが増加するほど担保される傾向にあるが、発電効率を高める点からは、最適なアスペクト比があることを明らかにするとともに、セル面内分布の統計的な解析により局所の温度や電流密度の不均一を定量的に評価した。

第 5 章 Direct ammonia fueled cell では、前述の課題（B）として、純アンモニアないし一部が事前分解されたアンモニア燃料を SOFC に直接供給する“直接”内部分解型 SOFC を対象として検討した。なお、本章では多孔体である燃料極内でのアンモニア分解反応の分布やガス拡散の予測精度を上げるため、燃料極内ガス拡散のみ 3 次元解析を行うものとし Fick Model に替わって Dusty-gas Model を導入した。前述のように現時点では実験データとの比較はできないため、Tan が所属する研究グループのアンモニア直接供給 SOFC の詳細な単セル数値解析と比較することにより、擬似 3 次元化に際して導入した数値解析モデルの妥当性を確認した。計算条件は第 4 章と同様に流入温度と流量を固定しているが、流入時のアンモニア事前分解率を考慮した点で異なり、アスペクト比や燃料利用率を変化させて調べた点は第 4 章と同様とした。この結果、事前分解率に応じた直接内部分解による吸熱と、燃料利用率に応じた発電反応による発熱が、システム内温度分布を通じて発電効率および熱自立性に影響を与えること、さらにその程度がセルアスペクト比によって異なることを明らかにした。

第 6 章 Direct and indirect ammonia fueled stack では、前述の課題（C）として、従来から用いられている燃料流と空気流の流れ方向の組み合わせ（Ⅰ 並流式、Ⅱ 対向流式、Ⅲ 直交流式）に加え、燃料流を一定方向に固定したうえで空気流のみ交互に流れ方向を変える新たな流れ方式、すなわち並流式と対向流式を折衷したようなⅣ 平行交互空気流式と、ⅢにⅣのような性格を持たせたⅤ 直交交互空気流式の二つの新提案を行い、間接および直接アンモニア供給の両者に対して、これらの対流伝熱の影響を検討した。セルは 70mm の正方形である以外は前章と同様な 5 層からなるユニットを 8 段積み重ね、計算条件の設定は基本的には第 5 章と同様とした（アスペクト比は 1 に固定）。計算結果の検討は、主に 8 段の中間に位置する 4 段目に注目して行い、電流密度、温度、水素モル分率などのセル面内分布の詳細を調べるとともにトータルな発電効率に及ぼす流れ方式の影響を明らかにした。本研究で提案したⅣとⅤは、諸量の面内分布の均一化という点で従来のⅡやⅢより優れ、また発電効率の点で従来のⅠ～Ⅲのいずれよりも優れることを明らかにし、これは交互流が望ましい熱循環を実現していることによると考察した。

最後に第 7 章 Conclusion において、本論文で得られた成果について要約するとともに

氏 名	Tan Wee Choon
-----	---------------

に、考えられる今後の展開を提案した。

以上要するに、本論文は、固体酸化物形燃料電池におけるスタック冷却方法が発電特性に及ぼす影響を数値解析により解明したものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成30年10月22日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

要旨公開可能日：            年            月            日以降







